

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-77084

(P2000-77084A)

(43) 公開日 平成12年3月14日 (2000.3.14)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	S 4 J 0 0 2
C 0 8 L 83/05		C 0 8 L 83/05	5 H 0 2 6
83/07		83/07	
H 0 1 M 8/10		H 0 1 M 8/10	

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平10-243094
 (22) 出願日 平成10年8月28日 (1998.8.28)

(71) 出願人 000006172
 三菱樹脂株式会社
 東京都千代田区丸の内2丁目5番2号
 (72) 発明者 宮川 倫成
 神奈川県平塚市真土2480番地 三菱樹脂株
 式会社平塚工場内
 (72) 発明者 泥谷 慎司
 神奈川県平塚市真土2480番地 三菱樹脂株
 式会社平塚工場内
 Fターム (参考) 4J002 CP14W CP14X CP14I GJ02
 GQ00 HA01
 5H026 AA06 BB04 BB10 CX08 EE18
 HH05

(54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池セパレータ用パッキング材

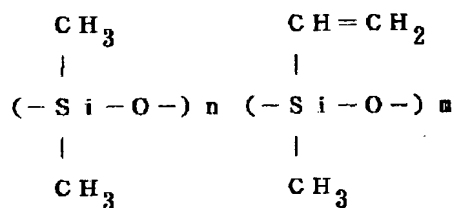
(57) 【要約】

【課題】 小型の燃料電池として使用できる固体高分子型燃料電池セパレータに係り、特に、長期の使用が可能なセパレータ用パッキング材を提供する。

【解決手段】 固体高分子型燃料電池セパレータの少なくとも片側周縁部に被覆するパッキング材において、そのパッキング材が下記A液とB液を反応架橋させてなる付加型液状シリコンゴムからなるとともに、

【化1】

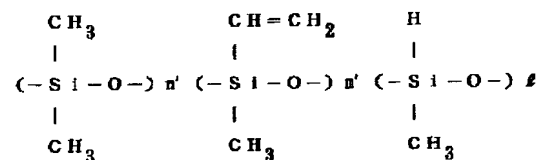
A液



(n + m = 50 ~ 2,000)

【化2】

B液



(n' + m' = 8 ~ 98) m' < 4

(1) A液及びB液中の合計ビニル基量と合計メチル基量とのモル比が、合計ビニル基量/合計メチル基量 = 0.1 ~ 0.6 の範囲、及び、(2) A液及びB液中の合計水素基量と合計ビニル基量とのモル比が、合計水素基量/合計ビニル基量 = 1.5 ~ 3.5 の範囲であることを特徴とする固体高分子型燃料電池セパレータ用パッキング材。

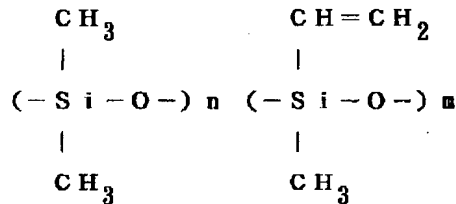
【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子型燃料電池セパレータの少なくとも片側周縁部に被覆するパッキング材において、そのパッキング材が下記A液とB液を反応架橋させてなる付加型液状シリコンゴムからなるとともに、

【化1】

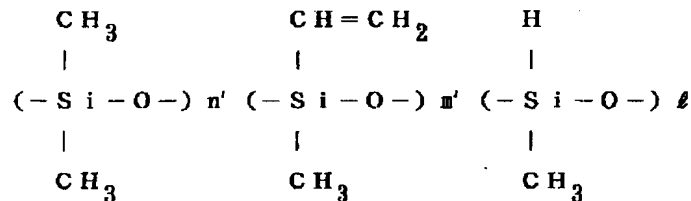
*

A液



$$(n+m=50\sim2,000)$$

B液



$$(n'+m'=8\sim98) \quad m'<l$$

(1) A液及びB液中の合計ビニル基量と合計メチル基量とのモル比が、
合計ビニル基量／合計メチル基量＝0.1～0.6の範囲、及び、(2) A液及びB液中の合計水素基量と合計
30 ビニル基量とのモル比が、
合計水素基量／合計ビニル基量＝1.5～3.5の範囲であることを特徴とする固体高分子型燃料電池セパレータ用パッキング材。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、小型の燃料電池として使用できる固体高分子型燃料電池セパレータに係り、特に、長期の使用が可能なセパレータ用パッキング材に関する。

【0002】

【従来の技術とその課題】最近の環境問題や資源問題に対応して燃料電池の開発が活発に行われている。特に燃料電池としては小型、軽量化の要求から固体高分子型燃料電池が検討され、このような電池用のセパレータとしては、より小型化が要求され、また多数のセパレータを重ね合わせて使用することから耐久性が優れ、長期間使用できるセパレータ用パッキング材が要求されている。

【0003】このようなセパレータ用パッキング材としては各種樹脂からなるパッキング材が検討されている ※50

※が、成形性、耐熱性、弾性に優れたシリコンゴム製のパッキング材が主に使用されている。さらにシリコンゴムとしてはより成形性に優れた二液タイプの付加型液状シリコン樹脂が用いられている。しかしながら、二液タイプの付加型液状シリコン樹脂では確かに成形性は優れているが、長期間の弾性を維持することが出来ず、耐久性に劣るという問題があった。

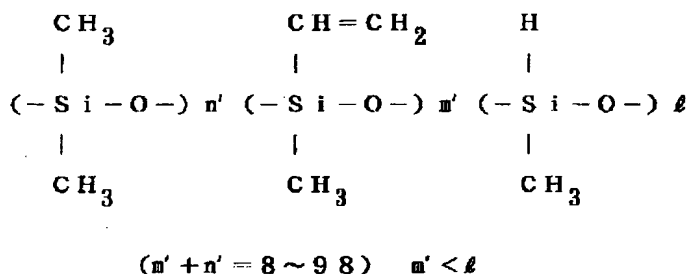
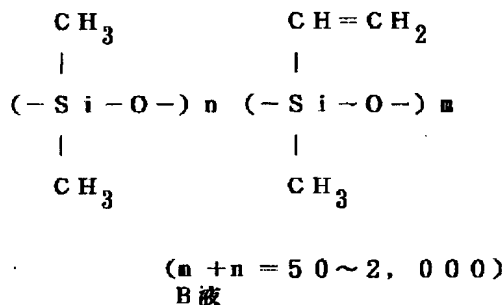
【0004】

【課題を解決するための手段】本発明は、上述の問題点を解消できる固体高分子型燃料電池セパレータを見出したものであり、その要旨とするところは、固体高分子型燃料電池セパレータの少なくとも片側周縁部に被覆するパッキング材において、そのパッキング材が下記A液と
40 B液を反応架橋させてなる付加型液状シリコンゴムからなるとともに、

【化3】

A液

【化4】



(1) A液及びB液中の合計ビニル基量と合計メチル基量とのモル比が、合計ビニル基量/合計メチル基量=0.1~0.6の範囲、及び、(2) A液及びB液中の合計水素基量と合計ビニル基量とのモル比が、合計水素基量/合計ビニル基量=1.5~3.5の範囲であることを特徴とする固体高分子型燃料電池セパレータ用パッキング材にある。

【0005】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳しく説明する。本発明に使用される液状シリコン樹脂は、特許請求の範囲に示した化学構造式のA液及びB液を用い、通常、この二液は成形直前に混合される。触媒としては、通常、白金系触媒が使用される。本発明においては上記A液及びB液中の合計ビニル基量、合計メチル基量及び、合計水素基量を測定し、三者間のモル比が特定の範囲において、パッキング材として優れた特性を有することを見出したものである。

【0006】上記モル比の測定方法は水素核磁気共鳴装置 ($^1\text{H-NMR}$) を使用し、溶媒、重クロロホルム、試料濃度5重量%、測定温度30℃の測定条件にて測定すればよい。

【0007】上記モル比の範囲は、次の(1)、(2)の両者を満足する必要がある。

(1) A液及びB液中の合計ビニル基量と合計メチル基量とのモル比が、合計ビニル基量/合計メチル基量=0.1~0.6の範囲であること。このモル比が0.1未満では、架橋点が少なすぎてゴムの硬度が低下しパッキング材としてのシール効果が出にくいという問題がある。0.6を越えるものでは、耐久性に劣るという問題がある。

【0008】(2) A液及びB液中の合計水素基量と合計ビニル基量とのモル比が、合計水素基量/合計ビニル基量=1.5~3.5の範囲であること。このモル比が1.5未満では、硬化時間が長くなり、成形性に劣り、3.5を越えるものでは、耐久性に劣るという問題がある。

【0009】上記組成内容のシリコン樹脂を用いたパッキング材の成形方法は通常の射出成形方法やプレス成形方法によればよく、セパレータ本体にステンレン鋼板等の金属薄板を使用したものでは、金型内に金属薄板を保持して樹脂を射出するインサート成形法によることもできる。

【0010】また上記シリコン樹脂は、粘度が $10^3 \sim 10^4$ ポイズ(25℃)の樹脂が好適に使用できる。粘度が 10^3 ポイズ未満のものでは、柔らかすぎて取り扱いにくく、 10^4 ポイズを越えるものでは、成形時の流動性に劣り易い傾向にある。さらに、必要に応じて微粉末シリカ、ケイそう土、高熱伝導性無機フィラー等の充填剤を添加してもよい。

【0011】成形後のシリコン樹脂層の厚みは0.05mm~1.0mmの範囲とする必要がある。0.05mm未満では、正確な成形がしずらく、また弾力効果が出にくく、パッキング材としての利用性に劣り、1.0mmを超えるものでは、特に固体高分子型燃料電池のセパレータ用としての用途では小型化しずらく、またコスト高になるという問題がある。

【0012】さらに、成形後のシリコン樹脂層の硬度を40~70、好ましくは50~60の範囲とする必要がある。硬度の測定方法はJISK6301 スプリング式硬さ試験 A形に準拠して行なう。この硬度が40

未満では柔らかすぎて取り扱いにくく、70を超えると硬くなりすぎて弾力性に欠けるという問題がある。

【0013】

【実施例】以下、実施例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。表1に示した組成の液状シリコーンゴムを用いて下記の方法にてパッキング材を得た。原料のA液とB液を1:1（重量比）でビーカー中で攪拌混合し、2時間真空乾燥機中で真空脱泡した。その後、所定形状（100mm×100mm×12.5mm）の下型に充填し、再度2時間真空乾燥機中で真空脱泡した。次に上型で蓋をして、プレス機を用い、170℃の加熱温度で、90Kg/cm²、10分間加圧した。その後、200℃で4時間乾燥し（二次加硫）、得られた板状の試験片を所定の円形状試験片に打ち抜いた。

【0014】得られた円形状試験片につき、応力緩和耐久試験を行い、その結果を表1に示した。 *

表1

	ビニル基／メタル基 (モル比)	水素基／ビニル基 (モル比)	応力緩和 試験結果
No1	0.25	2.6	◎
No2	0.5	1.9	◎
No3	0.92	1.44	×
No4	0.66	1.62	△

【0016】表1から本発明において規定するモル比を全て満足する試料No1及び2は圧縮応力保持率が良好で長期間弾性を維持できるため長期間の耐久性に優れていることが分かる。これに対して、モル比が範囲外の試料No3、4は圧縮応力保持率が低く耐久性に劣っていることが分かる。 ※

* 応力緩和耐久試験の試験方法：直径29.0mm、厚さ12.5mmの円形状試験片を圧縮板に挟み、2分以内に25%の圧縮歪みまで圧縮した。圧縮後直ちに、あらかじめ90℃、90%に保持した恒温高湿槽に圧縮した試験片を入れ、加熱を行った。30分経過後、試験片を恒温高湿槽から取り出し、2時間以内に試験片及び圧縮板を試験室の標準状態に戻し、試験室の標準状態で圧縮応力F(0)の測定を行った。以後、所定のt時間毎に、この操作を繰り返し、圧縮応力F(t)を150時間まで測定した。測定は2回づつ行い、測定値が10%以内で一致することを確かめた。圧縮応力保持率を以下の式により、算出した。

$$R(t) = F(t) / F(0) \times 100.$$

この値が75%以上のものを(◎)、65%以上75%未満のものを(△)、65%未満を(×)とした。

【0015】

【表1】

※【0017】

【発明の効果】上述したように、本発明のパッキング材では、長期間弾性を維持できる耐久性に優れており、長期の使用が可能な固体高分子型燃料電池のセパレータ用パッキング材として好適に使用できる。